



19. 1. 76
19. 1. 76
19. 1. 76

11

Offenlegungsschrift 26 01 780

21

Aktenzeichen:

P 26 01 780.1

22

Anmeldetag:

20. 1. 76

43

Offenlegungstag:

21. 7. 77

30

Unionspriorität:

32 33 31

54

Bezeichnung:

Substituierte N-Phenyl-N'-benzoylharnstoffe, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Insektizide

71

Anmelder:

Bayer AG, 5090 Leverkusen

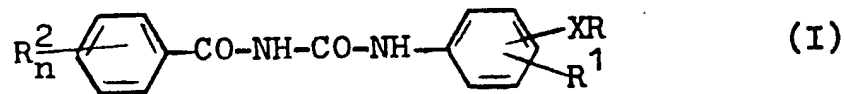
72

Erfinder:

Sirrenberg, Wilhelm, Dr., 4322 Sprockhövel; Klauke, Erich, Dr.;
Hammann, Ingeborg, Dr.; 5000 Köln; Stendel, Wilhelm, Dr.,
5600 Wuppertal

Patentansprüche

- 1) N-Phenyl-N'-benzoyl-harnstoffe der Formel (I)



in welcher

R für Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,

R¹ für Wasserstoff oder Halogen,

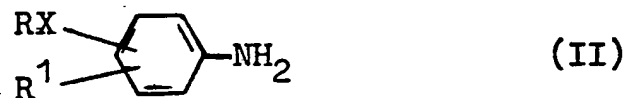
R² für Halogen, Nitro, Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen je Alkyl- bzw. Alkoxyrest und

X für ein Sauerstoff- oder Schwefelatom stehen, während

n eine Zahl von null bis 5 bedeutet.

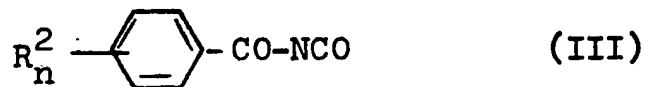
- 2) Verfahren zur Herstellung der N-Phenyl-N'-benzoyl-harnstoffe der Formel (I), gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man

a) substituierte Aniline der Formel



mit

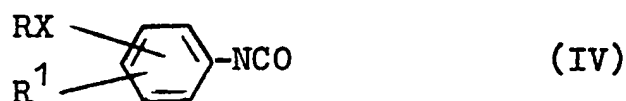
Benzoylisocyanaten der Formel



in welchen

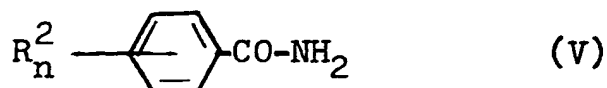
R, R¹, R², X und n die oben angegebene Bedeutung haben, gegebenenfalls in Gegenwart eines Lösungsmittels umgesetzt oder

b) substituierte Phenylisocyanate der Formel



mit

Benzamiden der Formel



in welchen

R, R¹, R², X und n die oben angegebene Bedeutung haben, gegebenenfalls in Gegenwart eines Lösungsmittels umgesetzt.

3. Insektizide Mittel gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem N-Phenyl-N'-benzoyl-harnstoff der Formel (I) gemäß Anspruch 1.
4. Verwendung von N-Phenyl-N'-benzoyl-harnstoff der Formel (I) gemäß Anspruch 1 zur Bekämpfung von Insekten.
5. Verfahren zur Bekämpfung von Insekten, dadurch gekennzeichnet, daß man N-Phenyl-N'-benzoyl-harnstoffe der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf Insekten und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
6. Verfahren zur Herstellung von insektiziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man N-Phenyl-N'-benzoyl-harnstoffe der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen vermischt.

5090 Leverkusen, Bayerwerk

Rt/kl

Typ Ib

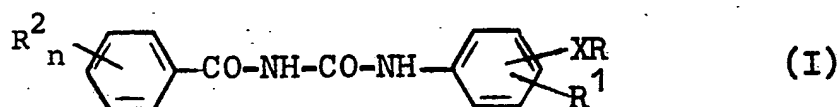
19. JAN. 1976

Substituierte N-Phenyl-N'-benzoyl-harnstoffe, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Insektizide

Die vorliegende Erfindung betrifft neue N-Phenyl-N'-benzoyl-harnstoffe, mehrere Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Insektizide.

Es ist bereits bekannt, daß bestimmte Benzoylharnstoffe, wie z.B. N-(2,6-Dichlorbenzoyl)-N'-(4-chlor- bzw. 3,4-dichlor-phenyl)-harnstoff, insektizide Eigenschaften besitzen (vergleiche Deutsche Offenlegungsschrift 2.123.236).

Es wurde gefunden, daß die neuen N-Phenyl-N'-benzoyl-harnstoffe der Formel I



in welcher

R für Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,

R¹ für Wasserstoff oder Halogen,

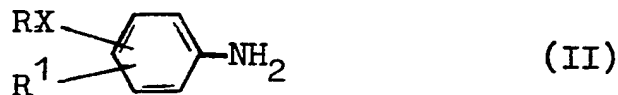
R² für Halogen, Nitro, Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen je Alkyl- bzw. Alkoxyrest und

Le A 16 924

X für ein Sauerstoff- oder Schwefelatom stehen, während n eine Zahl von null bis 5 bedeutet, starke insektizide Eigenschaften besitzen.

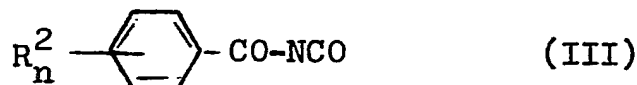
Weiterhin wurde gefunden, daß die neuen N-Phenyl-N¹-benzoylharnstoffe der Formel (I) erhalten werden, wenn man

a) substituierte Aniline der Formel



mit

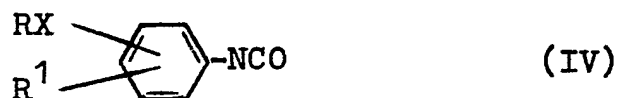
Benzoylisocyanaten der Formel



in welchen

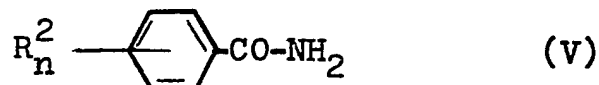
R, R¹, R², X und n die oben angegebene Bedeutung haben, gegebenenfalls in Gegenwart eines Lösungsmittels umgesetzt oder

b) substituierte Phenylisocyanate der Formel



mit

Benzamiden der Formel

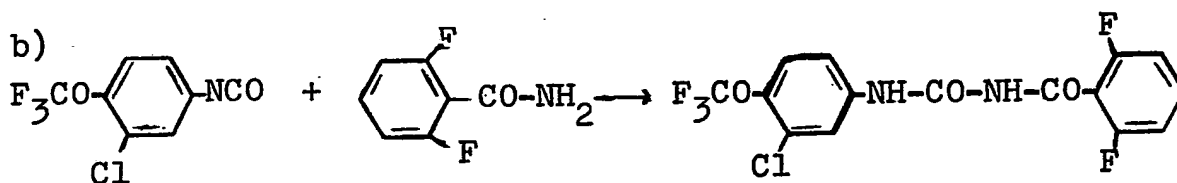
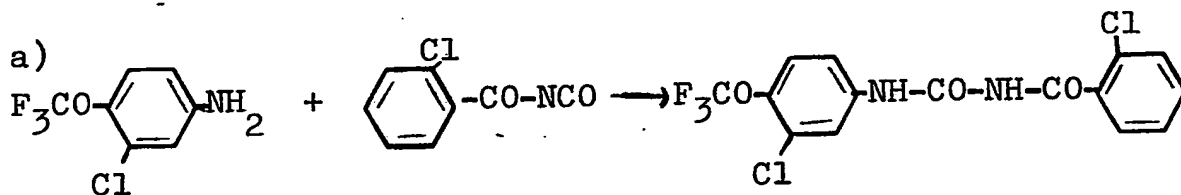


in welchen

R, R¹, R², X und n die oben angegebene Bedeutung haben, gegebenenfalls in Gegenwart eines Lösungsmittels umgesetzt.

Überraschenderweise besitzen die erfindungsgemäßen neuen N-Phenyl-N'-benzoyl-harnstoffe eine wesentlich bessere insektizide Wirkung als die nächstliegenden aus dem Stand der Technik vorbekannten Verbindungen analoger Konstitution und gleicher Wirkungsrichtung. Die erfindungsgemäßen Stoffe stellen somit eine echte Bereicherung der Technik dar.

Verwendet man nach Verfahren a) 3-Chlor-4-trifluormethoxy-anilin und 2-Chlorbenzoylisocyanat und nach Verfahren b) 3-Chlor-4-trifluormethoxy-phenylisocyanat und 2,6-Difluorbenzamid als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsverlauf durch die folgenden Formelschemata wiedergegeben werden:



Die zu verwendenden Ausgangsstoffe sind durch die Formeln (II) bis (V) allgemein definiert. Vorzugsweise stehen darin jedoch:

R für geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3, insbesondere 1 oder 2, Kohlenstoffatomen,

R¹ für Wasserstoff oder Chlor,

R² für Nitro, Fluor, Chlor, Brom, Jod, Methyl, Äthyl, Methoxy, oder Äthoxy und

n für 0 bis 3.

Die als Ausgangsstoffe zu verwendenden substituierten Aniline (II) sind bekannt oder nach literaturbekannten Verfahren herstellbar (vergleiche z.B. J.Org.Chem. 25, (1960), 965 und 25, (1964), 1; Am.Soc. 73, (1951), 5831; Bull.Soc.Chim.France 4, (1957), 531; Z.obsc.Chim. 35, (1965), 1377 engl. Transl.; Am. Soc. 83 (1961), 4360 und USA-Patentschrift 3.387.037), die Aminogruppe kann nach üblichen Verfahren in die Isocyanatgruppe umgewandelt werden, z.B. durch Umsetzung mit Phosgen, wodurch die entsprechenden Phenylisocyanate (IV) erhalten werden.

Als Beispiele seien im einzelnen genannt:

4-Trifluormethoxy-, 4-Trifluormethylthio-, 3-Trifluormethoxy-, 3-Trifluormethylthio-, 2-Trifluormethoxy-, 2-Trifluormethylthio-, 3-Chlor-4-trifluormethoxy-, 3-Chlor-4-trifluormethylthio-, 4-Difluormonochlormethylthio-, 3-Chlor-4-difluormonochlormethylthio-, 2-Chlor-4-difluormonochlormethylthio-, 4-(2-Chlor-1,1,2-trifluor-äthoxy)-, 3-Chlor-4-(2-chlor-1,1,2-trifluor-äthoxy)-anilin bzw. -phenylisocyanat.

Die weiterhin als Ausgangsstoffe zu verwendenden Benzoylisocyanate (III) sind bekannt (vergleiche J.Org.Chem. 30 (12), S. 4306-4307 (1965)), ebenso wie die Benzamide (V) (vergleiche Beilstein "Handbuch der organischen Chemie" Bd. 9, S. 336).

Als Beispiele seien im einzelnen genannt:

2-Methyl-, 2-Äthyl-, 3-Methyl-, 3-Äthyl-, 4-Methyl-, 4-Äthyl-, 2-Chlor-, 4-Chlor-, 2,4-Dichlor-, 2,4-Difluor-, 2,6-Dichlor-, 2,6-Difluor-, 2-Fluor-, 2-Brom-, 2-Jod-, 2-Nitro-, 3-Nitro-, 4-Nitro-, 2-Methoxy-, 2-Äthoxy- und 2,3,6-Trichlor-benzoylisocyanat bzw. -benzamid.

Die Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen N-Phenyl-N'-benzoyl-harnstoffe werden bevorzugt unter Mitverwendung geeigneter Lösungs- oder Verdünnungsmittel durchgeführt. Als solche kommen praktisch alle inerten organischen Solventien infrage. Hierzu gehören insbesondere aliphatische und aromatische, gegebenenfalls chlorierte, Kohlenwasserstoffe, wie Benzol, Toluol, Xylol, Benzin, Methylenchlorid, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Chlorbenzol, oder Äther, z.B. Diäthyl- und Dibutyläther, Dioxan, ferner Ketone, beispielsweise Aceton, Methyläthyl-, Methylisopropyl- und Methylisobutylketon, außerdem Nitrile, wie Aceto- und Propionitril.

Die Reaktionstemperatur kann innerhalb eines größeren Bereichs variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man zwischen 0 und 120°C, vorzugsweise bei 70 - 85°C.

Die Umsetzung läßt man im allgemeinen bei Normaldruck ablaufen.

Zur Durchführung des Verfahrens setzt man die Ausgangskomponenten vorzugsweise in äquimolaren Verhältnissen ein. Ein Überschuß der einen oder anderen Reaktionskomponente bringt keine wesentlichen Vorteile.

Im allgemeinen gibt man die Reaktionspartner in einem der angegebenen Lösungsmittel zusammen. Die bei der Reaktionsvariante b) einzusetzenden substituierten Phenylisocyanate (IV) können als solche oder ohne zwischenzeitliche Isolation in Form ihrer Reaktionsmischung, die nach der Umsetzung aus Amin und Phosgen erhalten wird, eingesetzt werden. Diese Reaktionsmischung wird vorzugsweise in einem der oben angegebenen Lösungsmittel mit dem Benzamid (V) versetzt.

Die Reaktionen werden unter den oben angegebenen Bedingungen durchgeführt und die sich ausscheidenden Produkte in üblicher Weise durch Filtration, Waschen und eventuellem Umkristallisieren isoliert.

Die Verbindungen fallen in kristalliner Form mit scharfem Schmelzpunkt an.

Wie bereits mehrfach erwähnt zeichnen sich die erfindungsgemäßen N-Phenyl-N'-benzoyl-harnstoffe durch eine hervorragende insektizide Wirksamkeit aus. Sie wirken nicht nur gegen Pflanzenschädlinge, sondern auch auf dem veterinärmedizinischen Sektor gegen tierische Parasiten (Ektoparasiten), wie parasitierende Fliegenlarven. Aus diesem Grund können die erfindungsgemäßen Verbindungen mit Erfolg im Pflanzenschutz und auf dem Veterinärsektor als Schädlingsbekämpfungsmittel eingesetzt werden.

Die Wirkstoffe eignen sich bei guter Pflanzenverträglichkeit und günstiger Warmblütertoxizität zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, insbesondere Insekten, die in der Landwirtschaft, in Forsten, im Vorrats- und Materialschutz sowie auf dem Hygienesektor vorkommen. Sie sind gegen normal sensible und resistente Arten sowie gegen alle oder einzelne Entwicklungsstadien wirksam. Zu den oben erwähnten Schädlingen gehören:

Aus der Ordnung der Isopoda z. B. *Oniscus asellus*, *Armadillidium vulgare*, *Porcellio scaber*.

Aus der Ordnung der Diplopoda z. B. *Blaniulus guttulatus*.

Aus der Ordnung der Chilopoda z. B. *Geophilus carpophagus*, *Scutigera spec.*

Aus der Ordnung der Symphyla z. B. *Scutigera immaculata*.

Aus der Ordnung der Thysanura z. B. *Lepisma saccharina*.

Aus der Ordnung der Collembola z. B. *Onychiurus armatus*.

Aus der Ordnung der Orthoptera z. B. *Blatta orientalis*, *Periplaneta americana*, *Leucophaea maderae*, *Blattella germanica*, *Acheta domesticus*, *Gryllotalpa* spp., *Locusta migratoria migratorioides*, *Melanoplus differentialis*, *Schistocerca gregaria*.

Aus der Ordnung der Dermaptera z. B. *Forficula auricularia*.

Aus der Ordnung der Isoptera z. B. *Reticulitermes* spp..

Aus der Ordnung der Anoplura z. B. *Phylloxera vastatrix*, *Pemphigus* spp., *Pediculus humanus corporis*, *Haematopinus* spp., *Linognathus* spp.

Aus der Ordnung der Mallophaga z.B. *Trichodectes* spp., *Damulinea* spp.

Aus der Ordnung der Thysanoptera z.B. *Hercinothrips femoralis*, *Thrips tabaci*.

Aus der Ordnung der Heteroptera z.B. *Eurygaster* spp., *Dysdercus intermedius*, *Piesma quadrata*, *Cimex lectularius*, *Rhodnius prolixus*, *Triatoma* spp.

Aus der Ordnung der Homoptera z.B. *Aleurodes brassicae*, *Bemisia tabaci*, *Trialeurodes vaporariorum*, *Aphis gossypii*, *Brevicoryne brassicae*, *Cryptomyzus ribis*, *Doralis fabae*,

Doralis pomi, *Eriosoma lanigerum*, *Hyalopterus arundinis*, *Macrosiphum avenae*, *Myzus* spp., *Phorodon humuli*, *Rhopalosiphum padi*, *Empoasca* spp., *Euscelis bilobatus*, *Nephotettix cincticeps*, *Lecanium corni*, *Saissetia oleae*, *Laodelphax striatellus*, *Nilaparvata lugens*, *Aonidiella aurantii*, *Aspidiotus hederae*, *Pseudococcus* spp., *Psylla* spp..

Aus der Ordnung der Lepidoptera z. B. *Pectinophora gossypiella*, *Bupalus piniarius*, *Cheimatobia brumata*, *Lithocolletis blancardella*, *Hyponomeuta padella*, *Plutella maculipennis*, *Malacosoma neustria*, *Euproctis chrysorrhoea*, *Lymantria* spp., *Bucculatrix thurberiella*, *Phyllocnistis citrella*, *Agrotis* spp., *Euxoa* spp., *Feltia* spp., *Earias insulana*, *Heliothis* spp., *Laphygma exigua*, *Mamestra brassicae*, *Panolis flammea*, *Prodenia litura*, *Spodoptera* spp., *Trichoplusia ni*, *Carpocapsa pomonella*, *Pieris* spp., *Chilo* spp., *Pyrausta nubilalis*, *Ephestia kuehniella*, *Galleria mellonella*, *Cacoecia podana*, *Capua reticulana*, *Choristoneura fumiferana*, *Clysia ambiguella*, *Homona magnanima*, *Tortrix viridana*.

Aus der Ordnung der Coleoptera z. B. *Anobium punctatum*, *Rhizophorthera dominica*, *Bruchidius obtectus*, *Acanthoscelides obtectus*, *Hylotrupes bajulus*, *Agelastica alni*, *Leptinotarsa decemlineata*, *Phaedon cochleariae*, *Diabrotica* spp., *Psylliodes chrysocephala*, *Epilachna varivestis*, *Atomaria* spp., *Oryzaephilus surinamensis*, *Anthonomus* spp., *Sitophilus* spp., *Otiorrhynchus sulcatus*, *Cosmopolites sordidus*, *Ceuthorrhynchus assimilis*, *Hypera postica*, *Dermestes* spp., *Trogoderma* spp., *Anthrenus* spp., *Attagenus* spp., *Lyctus* spp., *Meligethes aeneus*, *Ptinus* spp., *Niptus hololeucus*, *Gibbium psyllodes*, *Tribolium* spp., *Tenebrio molitor*, *Agriotes* spp., *Conoderus* spp., *Melolontha melolontha*, *Amphimallon solstitialis*, *Costelytra zealandica*.

Aus der Ordnung der Hymenoptera z. B. *Diprion* spp., *Hoplocampa* spp., *Lasius* spp., *Monomorium pharaonis*, *Vespa* spp.

Aus der Ordnung der Diptera z.B. *Aedes* spp., *Anopheles* spp., *Culex* spp., *Drosophila melanogaster*, *Musca* spp., *Fannia* spp., *Calliphora erythrocephala*, *Lucilia* spp., *Chrysomya* spp., *Cuterebra* spp., *Gastrophilus* spp., *Hyppobosca* spp., *Stomoxys* spp., *Oestrus* spp., *Hypoderma* spp., *Tabanus* spp., *Tannia* spp.,

Bibio hortulanus, Oscinella frit, Phorbia spp., Pegomya hyoscyami, Ceratitis capitata, Dacus oleae, Tipula paludosa.

Aus der Ordnung der Siphonaptera z.B. Xenopsylla cheopis, Ceratophyllus spp..

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Schäume, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Aerosole, Suspensions-Emulsionskonzentrate, Saatgutpuder, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, ferner in Formulierungen mit Brennsätzen, wie Räucherpatronen, -dosen, -spiralen u.ä. sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum erzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen infrage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chloräthylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie deren Äther und Ester, Ketone, wie Aceton, Methyläthylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser; mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-Treibgase, wie Halogenkohlenwas-

serstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid; als feste Trägerstoffe: natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate; als feste Trägerstoffe für Granulate: gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehle, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengel; als Emulgier- und/oder schaumerzeugende Mittel: nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyäthylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyäthylen-Fettalkohol-Äther, z.B. Alkylaryl-polyglykol-äther, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel: z.B. Lignin, Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo-Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die Anwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe erfolgt in Form ihrer handelsüblichen Formulierungen und/oder den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen.

Der Wirkstoffgehalt der aus den handelsüblichen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen kann in weiten Bereichen variieren. Die Wirkstoffkonzentration der Anwendungsformen kann von 0,0000001 bis zu 100 Gew.-% Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,01 und 10 Gew.-% liegen.

Die Anwendung geschieht in einer den Anwendungsformen angepaßten üblichen Weise.

Die Anwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geschieht im Veterinärsektor in bekannter Weise, wie durch orale Anwendung in Form von beispielsweise Tabletten, Kapseln, Tränken, Granulaten, durch dermale Anwendung in Form beispielsweise des Tauchens (Dippen), Sprühens (Sprayen), Aufgießens (pour-on and spot-on) und des Einpuderns sowie durch parenterale Anwendung in Form beispielsweise der Injektion.

Beispiel A

Phaedon-Larven-Test

Lösungsmittel: 15 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykoläther

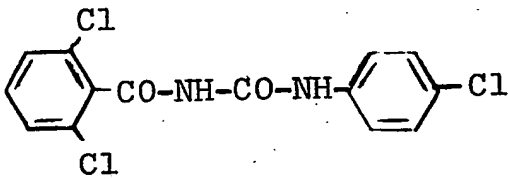
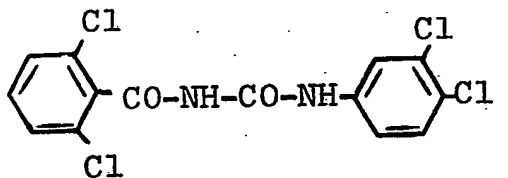
Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und der angegebenen Menge Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Mit der Wirkstoffzubereitung besprüht man Kohlblätter (*Brassica oleracea*) tropfnaß und besetzt sie mit Meerrettichblattkäfer-Larven (*Phaedon cochleariae*).

Nach den angegebenen Zeiten wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Käfer-Larven abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Käfer-Larven abgetötet wurden.

Wirkstoffe, Wirkstoffkonzentrationen, Zeiten der Auswertung und Resultate gehen aus der nachfolgenden Tabelle hervor:

T a b e l l e
(pflanzenschädigende Insekten)
Phaedon Larven-Test

Wirkstoffe Beispiel Nr.	Wirkstoffkon- zentration in %	Abtötungsgrad in % nach 3 Tagen
 (bekannt)	0,1	100
	0,01	30
	0,001	0
 (bekannt)	0,1	100
	0,01	15
	0,001	0
58	0,1	100
	0,01	100
	0,001	95
61	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
10	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
40	0,1	100
	0,01	100
	0,001	80

T a b e l l e (Fortsetzung)
(pflanzenschädigende Insekten)
Phaedon Larven-Test

Wirkstoffe Beispiel Nr.	Wirkstoffkon- zentration in %	Abtötungsgrad in % nach 3 Tagen
44	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
30	0,1	100
	0,01	100
	0,001	90
33	0,1	100
	0,01	100
	0,001	80
29	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
78	0,1	100
	0,01	100
	0,001	90
79	0,1	100
	0,01	100
	0,001	65
75	0,1	100
	0,01	100
	0,001	80

T a b e l l e (Fortsetzung)
(pflanzenschädigende Insekten)
Phaedon Larven-Test

Wirkstoffe Beispiel Nr.	Wirkstoffkon- zentration in %	Abtötungsgrad in % nach 3 Tagen
76	0,1	100
	0,01	100
	0,001	85
21	0,1	100
	0,01	100
	0,001	85
19	0,1	100
	0,01	100
	0,001	65
18	0,1	100
	0,01	100
	0,001	80

Beispiel B

Plutella-Test

Lösungsmittel: 15 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolglykoläther

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und der angegebenen Menge Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

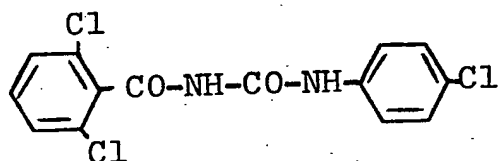
Mit der Wirkstoffzubereitung besprüht man Kohlblätter (*Brassica oleracea*) taufeucht und besetzt sie mit Raupen der Kohlschabe (*Plutella maculipennis*).

Nach den angegebenen Zeiten wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Raupen abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Raupen abgetötet wurden.

Wirkstoffe, Wirkstoffkonzentrationen, Auswertungszeiten und Resultate gehen aus der nachfolgenden Tabelle hervor:

T a b e l l e
(pflanzenschädigende Insekten)
Plutella-Test

Wirkstoffe	Wirkstoffkonzentration in %	Abtötungsgrad in % nach 7 Tagen
Beispiel Nr.		



(bekannt)

	0,1	65
	0,01	0
58	0,1	100
	0,01	100
59	0,1	100
	0,01	100
62	0,1	100
	0,01	100
60	0,1	100
	0,01	100
61	0,1	100
	0,01	100
10	0,1	100
	0,01	100
2	0,1	100
	0,01	100

Le A 16 924

- 17 -

20

T a b e l l e (Fortsetzung)
(pflanzenschädigende Insekten)
Plutella-Test

Wirkstoffe Beispiel Nr.	Wirkstoffkon- zentration in %	Abtötungsgrad in % nach 7 Tagen
40	0,1	100
	0,01	100
39	0,1	100
	0,01	100
42	0,1	100
	0,01	100
43	0,1	100
	0,01	100
44	0,1	100
	0,01	100
41	0,1	100
	0,01	100
34	0,1	100
	0,01	100
30	0,1	100
	0,01	100

Le A 16 924

- 18 -

21

T a b e l l e (Fortsetzung)
(pflanzenschädigende Insekten)
Plutella-Test

Wirkstoffe Beispiel Nr.	Wirkstoffkon- zentration in %	Abtötungsgrad in % nach 7 Tagen
33	0,1	100
	0,01	100
28	0,1	100
	0,01	100
29	0,1	100
	0,01	100
32	0,1	100
	0,01	100
77	0,1	100
	0,01	100
78	0,1	100
	0,01	100
79	0,1	100
	0,01	100
75	0,1	100
	0,01	100
74	0,1	100
	0,01	100

14

T a b e l l e (Fortsetzung)
(pflanzenschädigende Insekten)
Plutella-Test

Wirkstoffe Beispiel Nr.	Wirkstoffkon- zentration in %	Abtötungsgrad in % nach 7 Tagen
76	0,1	100
	0,01	100
21	0,1	100
	0,01	100
20	0,1	100
	0,01	100
19	0,1	100
	0,01	100
18	0,1	100
	0,01	100

Beispiel C

Laphygma-Test

Lösungsmittel: 15 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpoliglykoläther

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und der angegebenen Menge Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

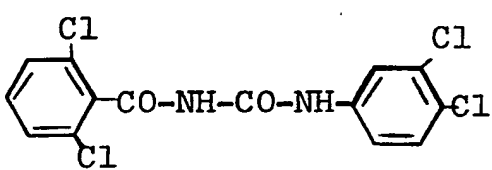
Mit der Wirkstoffzubereitung besprüht man Baumwollblätter (*Gossypium hirsutum*) taufeucht und besetzt sie mit Raupen des Eulenfalters (*Laphygma exigua*).

Nach den angegebenen Zeiten wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Raupen abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Raupen abgetötet wurden.

Wirkstoffe, Wirkstoffkonzentrationen, Auswertungszeiten und Resultate gehen aus der nachfolgenden Tabelle hervor:

24

T a b e l l e
(pflanzenschädigende Insekten)
Laphygma-Test

Wirkstoffe Beispiel Nr.	Wirkstoffkon- zentration in %	Abtötungsgrad in % nach 7 Tagen
 (bekannt)	0,001	100
	0,0001	50
	0,00001	0
58	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	100
59	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	100
62	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	95
61	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	95
10	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	90

25

T a b e l l e (Fortsetzung)
(pflanzenschädigende Insekten)
Laphygma-Test

Wirkstoffe Beispiel Nr.	Wirkstoffkon- zentration in %	Abtötungsgrad in % nach 7 Tagen .
2	0,001	100
	0,0001	95
	0,00001	90
44	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	80
30	0,001	100
	0,0001	95
	0,00001	65
29	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	90
79	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	80
75	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	90

T a b e l l e (Fortsetzung)
(pflanzenschädigende Insekten)
(Laphygma-Test)

Wirkstoffe Beispiel Nr.	Wirkstoffkon- zentration in %	Abtötungsgrad in % nach 7 Tagen
76	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	85
21	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	100
20	0,001	100
	0,0001	90
	0,00001	90
18	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	100

Beispiel D

Test mit parasitierenden Fliegenlarven

Lösungsmittel: 35 Gewichtsteile Äthylenpolyglykolmonomethyläther
35 Gewichtsteile Nonylphenolpolyglykoläther

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 30 Gewichtsteile der betreffenden aktiven Substanz mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, das den oben genannten Anteil Emulgator enthält und verdünnt das so erhaltene Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

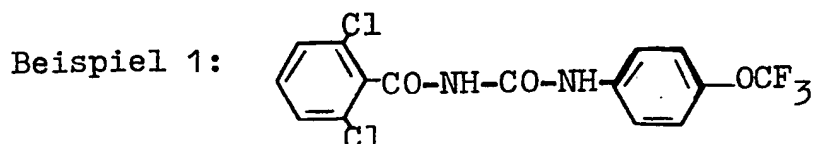
30 - 50 Fliegenlarven (*Lucilia cuprina*) werden in ein Teströhrchen gebracht, welches ca. 1 cm³ Pferdemuskulatur enthält. Auf dieses Pferdefleisch werden 0,5 ml der Wirkstoffzubereitung gebracht. Nach 24 Stunden wird der Abtötungsgrad in % bestimmt. Dabei bedeuten 100 %, daß alle, und 0 %, daß keine Larven abgetötet worden sind.

Wirkstoffe, Wirkstoffkonzentrationen und Resultate gehen aus der nachfolgenden Tabelle hervor:

18

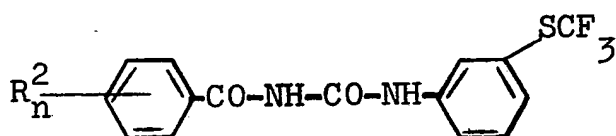
T a b e l l e
 Test mit parasitierenden Fliegenlarven
Lucilia cuprina resistant

Wirkstoff Beispiel Nr.	Wirkstoffkon- zentration in ppm	Abtötungsgrad in %
31	1.000	100
	300	100
63	1.000	100
64	1.000	100
74	1.000	100
	300	100
18	1.000	100
	300	100
	100	100
19	1.000	100
	300	100
	100	100
20	1.000	100

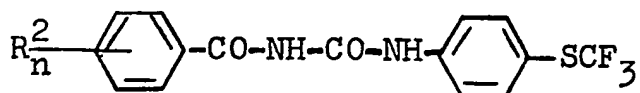
Herstellungsbeispiele

Zu 5,4g (0,03 Mol) 4-Trifluormethoxy-anilin gelöst in 80 ccm Toluol fügt man bei 60°C eine Lösung von 6,5g (0,03 Mol) 2,6-Dichlor-benzoylisocyanat in 20 ccm Toluol. Der Ansatz wird zwei Stunden bei 80°C gerührt, ein Teil des Lösungsmittels im Vakuum abdestilliert und das ausgefallene Produkt abgesaugt. Nach dem Trocknen erhält man 10g (84,5 % der Theorie) an analysenreinem N-(4-Trifluormethoxy-phenyl)-N'-(2,6-dichlorbenzoyl)-harnstoff mit dem Schmelzpunkt von 202°C.

In analoger Arbeitsweise wie unter Beispiel 1 beschrieben erhält man die folgenden Verbindungen, wobei eine Optimierung der Ausbeuten möglich ist:



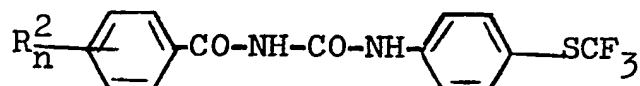
Beispiel-Nr.	R_n^2	Schmelzpunkt (°C)	Ausbeute (% der Theorie)
2	2,6-F	181	75,0
3	2-F	143	44,5
4	2-CH ₃	208	47,0
5	2-Cl	117	58,0
6	2,6-Cl	213	60,5
7	2-Br	135	55,0
8	2,3,6-Cl	216	45,0
9	2-J	158	33,0



Beispiel-Nr.	R_n^2	Schmelzpunkt ($^{\circ}\text{C}$)	Ausbeute (% der Theorie)
--------------	---------	--	-----------------------------

10	2,6-F	214	83,0
----	-------	-----	------

11	2-F	189	67,0
----	-----	-----	------



12	2,6-Cl	228	77,0
----	--------	-----	------

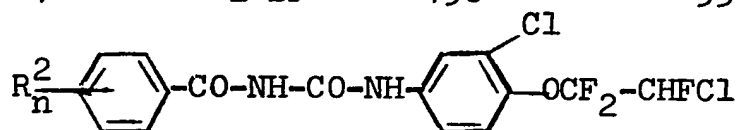
13	2-Cl	189	64,0
----	------	-----	------

14	2,3,6-Cl	209	32,0
----	----------	-----	------

15	2-J	187	41,5
----	-----	-----	------

16	2-CH ₃	169	41,5
----	-------------------	-----	------

17	2-Br	190	53,0
----	------	-----	------



18	2,6-F	207	90,0
----	-------	-----	------

19	2-Br	192	82,5
----	------	-----	------

20	2,6-Cl	183	49,0
----	--------	-----	------

21	2-Cl	187	75,0
----	------	-----	------

22	2-F	187	61,0
----	-----	-----	------

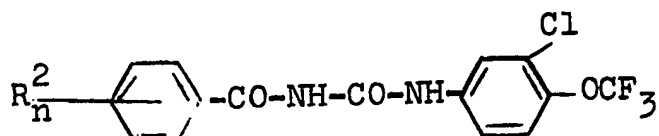
23	2-CH ₃	206	
----	-------------------	-----	--

24	H	203	61,5
----	---	-----	------

25	2-OCH ₃	103	39,5
----	--------------------	-----	------

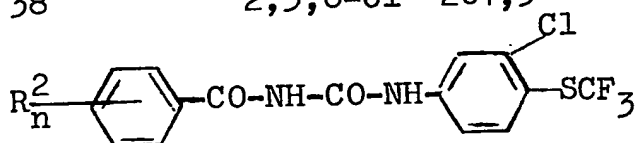
26	2,5-Cl	162	61,5
----	--------	-----	------

27	2,4-Cl	179	75,5
----	--------	-----	------

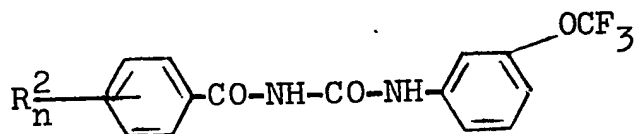


Beispiel-Nr.	R_n^2	Schmelzpunkt ($^{\circ}\text{C}$)	Ausbeute (% der Theorie)
--------------	---------	--	-----------------------------

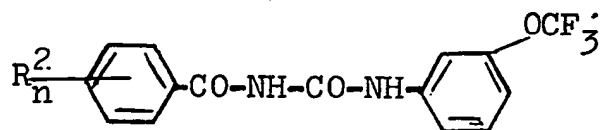
28	2-F	161	40,0
29	2,6-F	204-205	51,0
30	2-Cl	194	76,0
31	2,6-Cl	204	82,0
32	2-J	165	27,5
33	2-Br	177	68,5
34	2-OCH ₃	175	38,5
35	2-CH ₃	182	
36	2,4-Cl	201	89,5
37	2,5-Cl	150	58,5
38	2,3,6-Cl	201,5	34,0



39	2,6-Cl	211	71,5
40	2-Cl	195	73,0
41	2-J	171	60,0
42	2-Br	189	59,0
43	2-F	162	81,0
44	2,6-F	188	70,5
45	2-CH ₃	168	
46	alle H	208	50,0
47	2,4-Cl	184	86,0

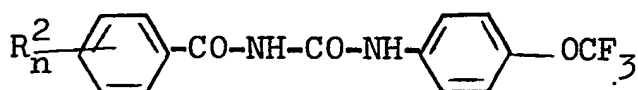


48	2,6-F	176	92,5
----	-------	-----	------

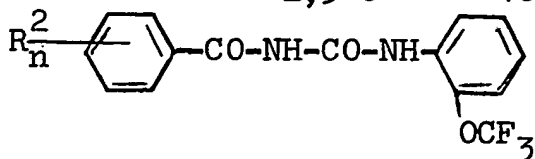


Beispiel-Nr.	R_n^2	Schmelzpunkt ($^{\circ}\text{C}$)	Ausbeute (% der Theorie)
--------------	---------	--	-----------------------------

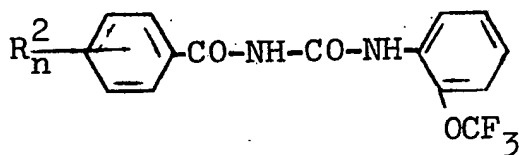
49	2,6-Cl	200	53,5
50	2-Cl	154	58,5
51	2-Br	150	37,0
52	2-CH ₃	216	
53	2-F	138	68,0
54	2,4-Cl	146	52,5
55	alle H	179	76,0
56	2-J	151	38,5



57	2-CH ₃	190	62,0
58	2-Cl	198	88,0
59	2,6-Cl	202	84,5
60	2-F	181-182	58,5
61	2,6-F	226	74,0
62	2-Br	190	74,5
63	alle H	225	92,5
64	2,3,6-Cl	163	47,0
65	2-J	176	74,0
66	2-OCH ₃	148	37,5
67	2,4-Cl	176,5	84,5
68	2,5-Cl	166-167	87,5

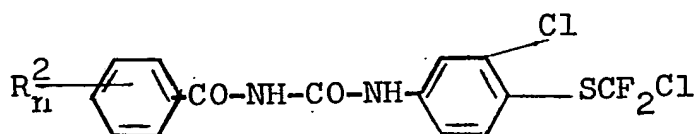


69	2,6-F	172	77,0
70	2,6-Cl	211	92,5
71	2-F	138	87,0

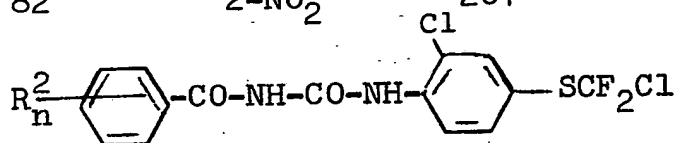


Beispiel-Nr.	R_n^2	Schmelzpunkt ($^{\circ}\text{C}$)	Ausbeute (% der Theorie)
--------------	---------	--	-----------------------------

72	2-Cl	137	73,5
73	2-Br	134-135	71,0



74	2-F	153	49,0
75	2-Br	172	71,0
76	2,6-F	185	54,5
77	2-CH ₃	166	82,5
78	2-Cl	182	78,5
79	2,6-Cl	188	87,0
80	2,3,6-Cl	188	60,5
81	alle H	186	85,0
82	2-NO ₂	201	84,0



83	2,6-F	193	61,0
84	2,6-Cl	191	56,5
85	2-Cl	191	66,0
86	2-CH ₃	165	
87	2-F ³	160	73,0
88	2-Br	180	49,5

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☒ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.